

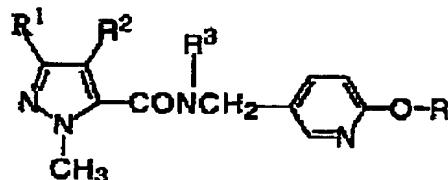
EUROPEAN PATENT OFFICE

B4

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 10053583
 PUBLICATION DATE : 24-02-98

APPLICATION DATE : 09-08-96
 APPLICATION NUMBER : 08211378



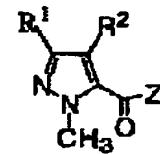
I

APPLICANT : MITSUBISHI CHEM CORP;

INVENTOR : TONO SUMIAKI;

INT.CL. : C07D401/12 A01N 43/56

TITLE : PYRAZOLE COMPOUND AND
 ANTIMICROBIAL, INSECTICIDAL AND
 ACARICIDAL AGENT CONTAINING
 THE SAME AS ACTIVE INGREDIENT



II

ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject new compound having high control effects against various kinds of pathogenic microbes, insect pests, etc., exhibiting resistance against conventional fungicides for agriculture and horticulture, etc., and useful as an active ingredient for highly safe fungicides, etc., reduced in residual toxicity, environmental pollutions etc.

SOLUTION: A pyrazole compound of formula I [R¹, R² are each OH, a 1-4C alkoxy, etc.; R³ is H or acetyl; R is a 1-4C alkyl, (substituted) phenyl, etc.], e.g. N-[6-(4-trifluoromethylphenoxy)-3-phridylmethyl]-4-methoxy-1,3-dimethyl-5-pyrazole carboxamide. The compound of formula I is obtained by reacting a compound of formula II (Z is chlorine, bromine) in the presence of a base (e.g. NaOH) in an aromatic hydrocarbon such as benzene or in a polar solvent such as a ketone or water at 0-30°C. The compound of formula I is contained as an active ingredient in an amount of 0.1-99.5wt.% in a fungicide for agriculture and horticulture, etc.

COPYRIGHT: (C)1998,JPO

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-53583

(43)公開日 平成10年(1998)2月24日

(51)Int.Cl.⁸
C 0 7 D 401/12
A 0 1 N 43/56

識別記号 231
府内整理番号

F I
C 0 7 D 401/12
A 0 1 N 43/56

技術表示箇所
231
C

審査請求 未請求 請求項の数 5 O.L (全 10 頁)

(21)出願番号 特願平8-211378

(22)出願日 平成8年(1996)8月9日

(71)出願人 000005968
三菱化学株式会社
東京都千代田区丸の内二丁目5番2号
(72)発明者 興村 伸夫
神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地
三菱化学株式会社横浜総合研究所内
(72)発明者 池田 芳哉
神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地
三菱化学株式会社横浜総合研究所内
(72)発明者 奥井 周子
神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地
三菱化学株式会社横浜総合研究所内
(74)代理人 弁理士 長谷川 曜司

最終頁に続ぐ

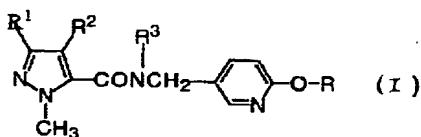
(54)【発明の名称】 ピラゾール化合物およびこれを有効成分とする殺菌、殺虫、殺ダニ剤

(57)【要約】

【課題】 従来の農園芸用殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤に抵抗性示す各種病原菌や害虫に対しても高い防除効果を有する新規化合物を提供する。

【解決手段】 下記一般式(I)

【化1】

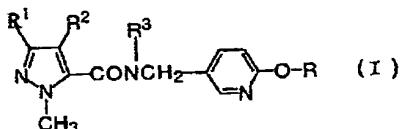


[上記式中、R¹及びR²の一方は水酸基、C₁～C₄のアルコキシ基、アセトキシ基、C₁～C₄のハロアルコキシ基、C₁～C₄のアルコキシアルコキシ基またはベンジルオキシ基を示し、他方は水素原子、C₁～C₄のアルキル基またはハロゲン原子を示し、R³は水素原子またはアセチル基を示し、RはC₁～C₄のアルキル基、C₁～C₄のハロアルコキシ基、C₁～C₄のハロアルキル基またはハロゲン原子から選ばれる置換基によって置換されていてもよいフェニル基を示す]

【特許請求の範囲】

【請求項1】下記一般式(I)

〔41〕



【請求項2】一般式(I)において、R1及びR2の一方がC₁～C₄のアルコキシ基である請求項1記載のピラゾール化合物。

【請求項3】請求項1に記載のピラゾール化合物を有効成分として含む農園芸用殺菌剤。

【請求項4】請求項1に記載のピラゾール化合物を有効成分として含む農園芸用殺虫剤。

【請求項5】請求項1に記載のピラゾール化合物を有効成分として含む農園芸用殺ダニ剤。

【発明の詳細な説明】

卷之三

【発明の属する技術分野】本発明は新規なピラゾール化合物及び該ピラゾール化合物を有効成分として含む農園芸用の殺菌、殺ダニ剤に関する。

100021

【従来の技術】従来、農園芸分野では、各種病虫害の防除を目的とした様々な殺菌・殺虫剤が開発され実用に供されている。しかしながら、従来汎用されている農園芸用殺菌・殺虫剤は、殺菌・殺虫効果、殺菌・殺虫スペクトラムまたは残効性などの点において必ずしも満足すべきものではない。また、施用回数や施用薬量の低減などの要求も満足しているとはいえないものであった。

【0003】また、従来汎用の農薬に対して抵抗性を獲得した病原菌や害虫の出現も問題となっている。例えば、野菜、果樹、花卉、茶、ムギ類及びイネ等の栽培において、様々な型の農薬、例えば、トリアゾール系、イミダゾール系、ピリミジン系、ベンズイミダゾール系、ジカルボキシimid系、フェニルアミド系、有機リン系農薬等に抵抗性を獲得した種々の病原菌や害虫が各地で出現しており、これらの病原菌や害虫に起因する各種病害中の防除が年々困難になっている。

〔0004〕さらに、ジチオカルバメート系やフタルイ

ミド系農薬等の様に病原菌や害虫が未だ抵抗性を獲得していない農薬もあるが、これらは一般に施用薬量や施用回数が多く、環境汚染などの観点から好ましいものではない。従って、従来汎用の農園芸用殺菌・殺虫剤に抵抗性を獲得した各種病原菌や害虫に対しても低薬量で十分な防除効果を示し、しかも環境への悪影響が少ない新規な殺菌・殺虫剤の開発が切望されている。

【0005】加えて、殺ダニ剤についても、従来汎用の殺ダニ剤に抵抗性を示すダニに対しても優れた防除効果を示し、安全性の高い殺ダニ剤の開発が期待されている。一方、特開平2-62876号公報または特願平8-083587にはN-(フェノキシピリジルメチル)ピラゾールカルボキサミド化合物が開示されており、この化合物が殺虫、殺ダニ及び殺菌活性を有することが教示されている。しかし、この刊行物にはピラゾール環の3、4位の置換基として、アルキル基またはハロゲン原子をもつ化合物等は開示されているものの、3、4位の置換基がアルコキシ基で化合物については全く記載されていない。また、特開平2-264760号公報及び特開平7-173139号公報にはピラゾール環の3、4位の置換基としてアルコキシ基を持つピラゾールカルボキサミド化合物が開示されており、この化合物が殺虫、殺ダニ及び殺菌活性を有することが教示されている。しかし、この刊行物にはアミノ部分の置換基として、N-(フェノキシピリジルメチル)基については全く記載されていない。

[10006]

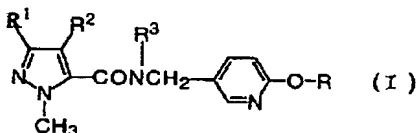
【発明が解決しようとする課題】本発明は、従来の農園芸用殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤に抵抗性を示す各種病原菌、害虫及びダニに対して高い防除効果を示し、農園芸用の殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤の有効成分として有用な化学物質を提供することを目的としている。また、本発明の別の目的は、上記の特徴を有し、かつ、残留毒性や環境汚染等の問題が軽減された安全性の高い農園芸用の殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤の有効成分として有用な化学物質を提供することにある。別の観点からは、上記の有用性を有するN-[6-フェノキシ-3-ピリジルメチル]ピラゾールカルボキサミド誘導体を提供することが本発明の目的である。

卷之三

【課題を解決するための手段】本発明者は上記の課題を解決すべく銳意努力した結果、下記の式で示される新規なピラゾール化合物が上記の特徴を有する化合物であることを見いだし、本発明を完成するに至った。すなわち本発明は、下記一般式（Ⅰ）

10008]

[442]



【0009】[上記式中、R¹及びR²の一方は、水酸基、C₁～C₄のアルコキシ基、アセトキシ基、C₁～C₄のハロアルコキシ基、C₁～C₄のアルコキシアルコキシ基またはベンジルオキシ基を示し、他方は水素原子、C₁～C₄のアルキル基またはハロゲン原子を示す。R³は水素原子またはアセチル基を示し、RはC₁～C₄のアルキル基、C₁～C₄のハロアルコキシ基、C₁～C₄のハロアルキル基またはハロゲン原子から選ばれる置換基により置換されてもよいフェニル基を示す]で表されるピラゾール化合物及びこの化合物を有効成分として含む農芸用の殺菌、殺虫、殺ダニ剤を提供するものである。

【0010】以下、本発明を詳細に説明する。

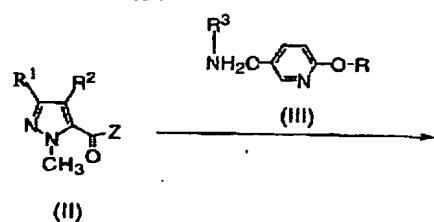
【0011】

【発明の実施の形態】一般式(I)で表される本発明の化合物の置換基R¹及びR²の一方は、水酸基；メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、s e c-ブトキシ基、t-ブトキシ基等のC₁～C₄の直鎖もしくは分岐鎖アルコキシ基；アセトキシ基；ジフルオロメトキシ基、トリフルオロメトキシ基、2-フルオロエトキシ基、2-クロロエトキシ基、2, 2, 2-トリフルオロエトキシ基、3-クロロプロポキシ基、3-ブロモプロポキシ基、3, 3, 3-トリフルオロプロポキシ基、2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロポキシ基、2, 2-ジクロロ-3, 3, 3-トリフルオロプロポキシ基、1, 3-ジフルオロ-2-ブロボキシ基、1, 1, 1, 3, 3-ヘキサフルオロ-2-ブロボキシ基、3, 3, 3-トリクロロプロポキシ基、4-クロロプロトキシ基、4, 4, 4-トリフルオロプロトキシ基、3, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロプロトキシ基等のC₁～C₄の直鎖もしくは分岐鎖ハロアルコキシ基；ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、2-フルオロエチル基、2-クロロエチル基、2, 2, 2-トリフルオロエチル基、2, 2, 2-トリクロロエチル基、3-クロロプロピル基、3-ブロモプロピル基、3, 3-トリフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル基、2, 2-ジクロロ-3, 3, 3-トリフルオロプロピル基、1, 3-ジフルオロ-2-ブロピル基、1, 1, 1, 3, 3-ヘキサフルオロ-2-ブロピル基、3, 3, 3-トリクロロプロピル基、4-クロロプロチル基、4, 4, 4-トリフルオロプロチル基、3, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロプロチル基等のC₁～C₄の直鎖もしくは分岐鎖ハロアルキル基；またはフッ素原子、塩素原子、ヨウ素原子等のハロゲン原子等の置換基で置換されてもよいフェニル基を示す。

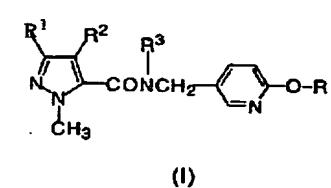
【0012】前記一般式(I)で表される本発明の化合物は、例えば下記反応式に従って製造することができる。

【0013】

【化3】



【0014】[上記式中、R¹、R²、R³及びRは前記



一般式(I)で定義したとおりであり、Zは塩素原子、

臭素原子、水酸基、メトキシ基、エトキシ基またはプロポキシ基を示す】

上記一般式(11)において、Zが塩素原子、臭素原子を示す場合には、溶媒としてベンゼン、トルエン、キシリレン等の芳香族炭化水素；アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類；クロロホルム、塩化メチレン等のハロゲン化炭化水素；水；酢酸メチル、塩化メチレン等のエステル類；またはテトラヒドロフラン、アセトニトリル、ジオキサン、N、N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドンまたはジメチルスルホキシド等の極性溶媒等を用い、0°C～30°C、好ましくは0°C～5°Cで塩基の存在下反応を行うことが出来る。塩基としては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ビリジンまたはトリエチルアミン等を用いることが出来る。

【0015】また、一般式(11)において、Zが水酸基、メトキシ基、エトキシ基、またはプロポキシ基である場合には、溶媒の非存在下、または、N、N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドンまたはジメチルスルホキシド等の高沸点溶媒中で150～250°C、好ましくは200～250°Cで反応を行うことが出来る。

尚、一般式(11)で表される化合物は、例えば、*Tetrahedron Letters*, 1591, (1971)に記載された方法に従って製造することが出来、また、一般式(111)で表される化合物は、例えば、*Journal fur Praktische Chemie*, 146, 95, (1936)に記載された方法に従って製造することが出来る。

【0016】一般式(I)で示される本発明化合物は、いもち病菌、さび病菌、べと病菌等の植物病原菌に対して高い殺菌効果を有しており、農園芸用の殺菌剤の有効成分として有用である。また、本発明の化合物はセジロウンカ、トビイロウンカ、ヒメトビウンカ等のウンカ類、ツマグロヨコバイ、オオヨコバイ等のヨコバイ類、モモアカアブラムシ等のアブラムシ類等の半翅目；ハスモンヨトウ、ニカメイチュウ、コブノメイガ、コナガ類等の鱗翅目；アズキゾウムシ等の鞘翅目；イエバエ、ネッタイシマカ、アカイエカ等の双翅目；直翅目の昆虫、並びに、ナミハダニ、ニセナミハダニ、ミカンハダニ等のダニ目の卵および幼虫に対して高い防除活性を有しているので、農園芸用の殺虫剤及び殺ダニ剤の有効成分としても有用である。もっとも、本発明の化合物の防除対象となる植物病原菌、昆虫、ダニは上記に例示したものに限定されることはない。

【0017】一般式(I)で示される本発明化合物を農園芸用の殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤として使用する場合には、単独で用いてもよいが、好ましくは当業界で汎用される農薬補助剤を加えた組成物として用いるのが好ましい。農園芸用殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤の剤型は特に限定されないが、例えば乳剤、水和剤、粉剤、フロ

アブル剤、細粒剤、粒剤、錠剤、油剤、噴霧剤、煙霧剤等の形態とすることが好適である。上記の化合物の1種又は2種以上を有効成分として配合することができる。

【0018】上記の農園芸用の殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤を製造するために用いられる農薬補助剤は例えば、農園芸用の殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤の効果の向上、安定化、分散性の向上等の目的で使用することが出来る。たとえば、担体(希釈剤)、展着剤、乳化剤、湿潤剤、分散剤、崩壊剤等を用いることができる。液体担体としては、水；トルエン、キシリレン等の芳香族炭化水素；メタノール、ブタノール、グリコール等のアルコール類；アセトン等のケトン類；ジメチルホルムアミド等のアミド類；ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類；メチルナフタレン；シクロヘキサン；動植物油；または脂肪酸等を挙げることができる。また、固体担体としてはクレー、カオリン、タルク、珪藻土、シリカ、炭酸カルシウム、モンモリナイト、ペントナイト、長石、石英、アルミナ、鋸屑、ニトロセルロース、デンプン、アラビアゴム等を用いることができる。乳化剤、分散剤としては通常の界面活性剤を使用することが出来、例えば、高級アルコール硫酸ナトリウム、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ラウリルベタイン等の陰イオン系界面活性剤；陽イオン系界面活性剤；非イオン系界面活性剤；または両性イオン系界面活性剤等を用いることができる。また、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンラウリルフェニルエーテル、ジアルキルスルホサクシネット等の湿潤剤；カルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール等の固着剤；リグニンスルホン酸ナトリウム、ラウリル硫酸ナトリウム等の崩壊剤を用いることができる。

【0019】本発明の農園芸用殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤における有効成分の含有量は、0.1～99.5%の範囲から選ばれ、製剤形態、施用方法等の種々の条件により適宜決定すればよいが、例えば、粉剤では約0.5～20重量%程度、好ましくは1～10重量%、水和剤では約1～90重量%程度、好ましくは10～80重量%、乳剤では約1～90重量%程度、好ましくは10～40重量%の有効成分を含有するように製造することが好適である。

【0020】例えば、乳剤の場合、有効成分である上記化合物に対して溶剤及び界面活性剤等を混合して原液の乳剤を製造することが出来、さらにこの原液を使用に際して所定濃度に水で希釈して施用することが出来る。水和剤の場合、有効成分の上記化合物、固体担体及び界面活性剤等を混合して原液を製造し、さらにこの原液を使用に際して所定濃度に水で希釈して施用することが出来る。粉剤の場合、有効成分の上記化合物、固体担体等を混合してそのまま施用することができ、粒剤の場合には、有効成分の上記化合物、固体担体及び界面活性剤等

を混合して造粒することにより製造し、そのまま施用することが出来る。もっとも、上記の各製剤形態の製造方法は上記のものに限定されることはなく、有効成分の種類や施用目的等に応じて当業者が適宜選択することができるものである。

【0021】本発明の農園芸用殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤には、有効成分である本発明の化合物以外に、他の殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、除草剤、昆虫生育調整剤、肥料、土壤改良剤等の任意の有効成分を配合してもよい。本発明の農園芸用殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤の施用方法は特に限定されるものではなく、茎葉散布、水面施用、土壤処理、種子処理等のいずれの方法でも施用することが出来る。例えば、茎葉散布の場合、5～1000 ppm、好ましくは10～500 ppmの濃度範囲の溶液を10アール当たり100～200L程度の施用量で用いることができる。水面施用の場合の施用量は通常、有効成分が5～15%の粒剤では10アール当たり1～10kgである。土壤処理の場合、5～1000 ppmの濃度範囲の溶液を1m²当たり1～10L程度の施用量で用いることができる。種子処理の場合、種子重量1kg当たり10～1000 ppmの濃度範囲の溶液を10～100m¹程度施用処理することができる。以下、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明の範囲は以下の実施例に限定されることはない。

【0022】

【実施例】

＜実施例1＞ N-[6-(4-トリフルオロメチルフェノキシ)-3-ピリジルメチル]-4-メトキシ-1,3-ジメチル-5-ピラゾールカルボキサミドの製造

4-メトキシ-1,3-ジメチル-5-ピラゾールカルボン酸1.7gと塩化チオニル5gを1時間加熱還流した。塩化チオニルを減圧下に留去した後、残渣をトルエン20mLに溶解した。この溶液を5-アミノメチル-2-(4-トリフルオロメチルフェノキシ)ピリジン2.7gおよびトリエチルアミン1.2gのトルエン溶液30mL中に0～10°Cで滴下した。滴下後室温で2時間搅拌した後、反応液を氷水に注ぎトルエンで抽出した。トルエン層を炭酸水素ナトリウム水溶液、水、飽和食塩水で順次洗浄した。無水硫酸ナトリウムで乾燥後、溶媒を減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、表1に記載の化合物(No.8) 3.8gを得た。

【0023】上記化合物のNMR、IRは以下の通りであった。

¹H-NMR (CDCl₃) δ ppm: 2.29 (3H, s), 3.84 (3H, s), 4.10 (3H, s), 4.58 (2H, d), 6.98 (1H, d), 7.23 (2H, d), 7.56 (1H, b), 7.65 (2H, d), 7.76 (1H, dd), 8.17 (1H, d)

IR (KBr) cm⁻¹: 3380, 1660, 1600, 1480, 1320, 1280, 1160, 1120, 1060

【0024】<実施例2>実施例1の方法に準じて表1に記載の化合物を得た。表中、*印の付いている数字は、屈折率を表す。

【0025】

【表1】

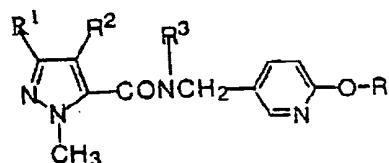


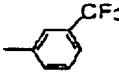
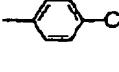
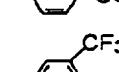
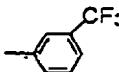
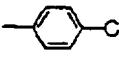
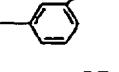
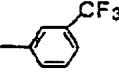
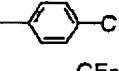
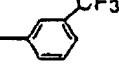
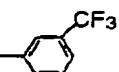
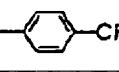
表 1

化合物No.	R ¹	R ²	R ³	R	融点 (℃) 又は屈折率
1	CH ₃	OH	H		無定形固体
2	CH ₃	OH	H		162-164
3	CH ₃	OH	H		189-191
4	CH ₃	OCH ₃	H		105-106
5	CH ₃	OCH ₃	H		85-86
6	CH ₃	OCH ₃	H		104-105
7	CH ₃	OCH ₃	H		1.5453 (23°C)
8	CH ₃	OCH ₃	H		115
9	CH ₃	OCH ₃	H		1.5515 (25°C)
10	CH ₃	OCH ₃	H		59-61
11	CH ₃	OC ₂ H ₅	H		1.5409 (24°C)
12	CH ₃	OC ₂ H ₅	H		1.5380 (24°C)

【0026】

【表2】

表 1 続き

化合物No.	R ¹	R ²	R ³	R	融点 (°C) 又は屈折率
13	CH ₃	-O-C ₆ H ₄ -	H		1.5572 (24°C) *
14	CH ₃	-O-C ₆ H ₄ -	H		111-112
15	CH ₃	-O-C ₆ H ₄ -	H		96-98
16	CH ₃	OCHF ₂	H		62-64
17	CH ₃	OCHF ₂	H		116-117
18	CH ₃	OCHF ₂	H		92-93
19	CH ₃	OCH ₂ OCH ₃	H		1.5370 (25°C) *
20	CH ₃	OOCCH ₃	H		88-90
21	C ₂ H ₅	OCH ₃	H		1.5441 (25°C) *
22	CH ₃ O	H	H		113-114
23	CH ₃ O	Cl	H		1.5430 (23°C) *
24	CH ₃	OCH ₃	COCH ₃		1.5461 (24°C) *

【0027】尚、化合物No. 1のNMRデータは、以下の通りであった。

¹H-NMR (CDCl₃) δ ppm: 2.03 (3H, s), 4.06 (3H, s), 4.55 (2H, d), 6.92 (1H, d), 7.27 (1H, d), 7.35 (1H, s), 7.45 (2H, m), 7.75 (2H, m), 8.08 (1H, d), 8.50 (1H, s)

以下、本発明の化合物を有効成分として含む農園芸用殺菌剤、殺虫剤及び殺ダニ剤の製剤例を示すが、本発明の農園芸用剤の形態は下記のものに限定されることはない。

【0028】<製剤例1> 水和剤

本発明の化合物20重量部、カーブレックス#80 (ホ

イトカーボン、塩野義製薬株式会社、商品名) 20重量部、STカオリンクレー (カオリナイト、土屋カオリン社、商品名) 5.2重量部、ソルボール9047K (アニオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名) 5重量部、ルノックスP65L (アニオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名) 3重量部を配合し、均一に混合粉碎して、有効成分20重量%の水和剤を得た。

【0029】<製剤例2> 粉剤

本発明の化合物2重量部、クレー (日本タルク社製) 9.3重量部、カーブレックス#80 (ホワイトカーボン、塩野義製薬株式会社、商品名) 5重量部を均一に混合粉碎して、有効成分2重量%の粉剤を製造した。

【0030】<製剤例3> 乳剤

本発明の化合物20重量部をキシレン3.5重量部および

ジメチルホルムアミド30重量部からなる混合溶媒に溶解し、これにソルボール3005X（非イオン性界面活性剤）とアニオン性界面活性剤の混合物、東邦化学株式会社、商品名）1.5重量部を加えて、有効成分20重量%の乳剤を得た。

【0031】<製剤例4> フロアブル剤

本発明の化合物30重量部、ソルボール9047K 5重量部、ソルボンT-20（非イオン性界面活性剤、東邦化学株式会社、商品名）3重量部、エチレングリコール8重量部および水44重量部をダイノミル（シンマルエンタープライゼス社製）で湿式粉碎し、このスラリー状混合物に1重量%キサンタンガム（天然高分子）水溶液10重量部を加え、良く混合粉碎して、有効成分20重量%のフルアブル剤を得た。

【0032】<試験例1> トビイロウンカの幼虫に対する殺虫効果

ガラス円筒（内径3cm×長さ17cm）に稻の芽だし苗をセットし、トビイロウンカ4令幼虫を5頭放虫した。製剤例3の処方に従って製造した本発明の農園芸用殺虫剤の水希釈液0.5mlを上記のガラス円筒に散布塔（みずほ理化製）を用いて散布した（1濃度、2反復）。処理5日後に、幼虫の生死及び苦悶を調査し、苦悶虫を1/2頭死として殺虫率（%）を求めた。結果を表2に示す（表中の化合物番号は表1に対応している）。

【0033】

【表3】

表 2

化合物No.	濃度(ppm)	殺虫率(%)
4	500	100
5	500	100
6	500	100
7	500	100
8	500	100
9	500	100
10	500	100
11	500	90
12	500	100
16	500	100
17	500	90
18	500	100
19	500	100
20	500	100
21	500	100
22	500	100
24	500	100

【0034】<試験例2> コナガの幼虫に対する殺虫

効果

製剤例1の処方に従って製造した本発明の農園芸用殺虫剤の水希釈液中に、キャベツ切葉（直径6cm）を1分間浸漬した。浸漬後風乾し、プラスチックカップ（内径7cm）にいれ、このカップ内にコナガの3令幼虫を5頭放虫した（1濃度、2反復）。放虫4日後に幼虫の生死及び苦悶を調査し、苦悶虫を1/2頭死として殺虫率（%）を求めた。結果を表3に示す（以下の表中、化合物番号は表1に対応している）。

【0035】

【表4】

表 3

化合物No.	濃度(ppm)	殺虫率(%)
4	500	100
5	500	100
6	500	100
7	500	100
8	500	100
9	500	100
10	500	100
16	500	100
17	500	100
18	500	100
21	500	100
22	500	90
24	500	100

【0036】<試験例3> ナミハダニの成虫に対する殺ダニ効果

インゲンのリーフディスク上（直径3cm）に10頭のナミハダニ雌成虫を放虫した。製剤例1の処方に従って製造した本発明の農園芸用殺ダニ剤を水で所定濃度に希釈した液0.5mlを、上記のディスク上に回転式散布塔（みずほ理化製）を用いて散布した（1濃度、2反復）。処理24時間後に成虫の生死を調査し殺ダニ率（%）を求めた。結果を表4に示す。

【0037】<試験例4> ナミハダニの卵に対する殺ダニ効果

インゲンのリーフディスク上（直径3cm）に5頭のナミハダニ雌成虫を放虫した。放虫後20時間リーフディスクに産卵させ、その後、雌成虫を除去した。製剤例1の処方に従って製造した本発明の農園芸用殺ダニ剤を水で所定濃度に希釈した液0.5mlを、上記のディスク上に回転式散布塔（みずほ理化製）を用いて散布した（1濃度、2反復）。処理8日後に未孵化卵数と孵化幼虫数を調査し殺卵率（%）を求めた。結果を表4に示す。

【0038】

【表5】

表 4

化合物No.	濃度(ppm)	殺ダニ率(%)	殺卵率(%)
7	500	100	100
9	500	100	100
10	500	100	100
21	500	100	100
24	500	100	100

【0039】<試験例5> イネいもち病に対する殺菌効果

直径6cmの樹脂製ポットで1ポット当たり10株のイネ（品種：アキニシキ）を育成した。製剤例1の処方に従って製剤した本発明の農園芸用殺菌剤（水和剤）を水で所定濃度に希釈し、上記のイネ（3～4葉期）に1ポット当たり10mlの割合で茎葉散布した。散布した薬液を風乾した後のイネに、オートミール培地で培養したイネ

いもち病菌（*Magnaporthe grisea*）の胞子懸濁液（ 5.0×10^5 胞子/ml）を噴霧接種し、25℃の温室に24時間保った。その後、温室内（22～25℃）で7日間放置し、出現した病斑数を測定し、下記式により防除価を算出した。結果を表5に示す。

【0040】

【数1】

(無処理区1葉当たりの病斑数) - (処理区1葉当たりの病斑数)

$$\text{防除価} = \frac{(\text{無処理区1葉当たりの病斑数}) - (\text{処理区1葉当たりの病斑数})}{(\text{無処理区1葉当たりの病斑数})} \times 100$$

【0041】

【表6】

表 5

化合物No.	濃度(ppm)	防除価(%)
4	250	100
5	250	100
6	250	100
7	250	100
8	250	100
9	250	100
10	250	100
13	250	95
14	250	92
16	250	100
17	250	93
18	250	100
19	250	100
22	250	96
24	250	100

【0042】<試験例6> トマト疫病に対する殺菌効果

直径6cmの樹脂製ポットで、1ポット当たり3株のイネ（品種：レッドチェリー）を育成した。製剤例1の処方に従って製剤した本発明の農園芸用殺菌剤（水和剤）を水で所定濃度に希釈し、上記のイネ（3～4葉期）に1ポット当たり10mlの割合で茎葉散布した。散布した薬液を風乾した後のイネに、トマト切葉上で培養したトマト疫病菌（*Phytophthora infestans*）の遊走子嚢懸濁液（ 5.0×10^4 遊走子嚢/ml）を噴霧接種し、25℃の温室に24時間保った。その後、温室内（20～22℃）で4日間放置し、葉中に出現した病斑数を測定し発病指數でしめし、下記式により防除価を算出した。結果を表6に示す。

【0043】

発病指數 0：無病斑

1：病斑面積1/3以下

3：病斑面積1/3～2/3

5：病斑面積2/3以上

n_x ：1ポット当たりの、上記発病指數がxであるトマトの葉数

【0044】

【数2】

$$\text{発病度(%)} = \frac{0 \times n_0 + 1 \times n_1 + 3 \times n_3 + 5 \times n_5}{5 (n_0 + n_1 + n_3 + n_5)} \times 100$$

【0045】

【数3】

無処理区発病度-処理区発病度

$$\text{防除率 (\%)} = \frac{\text{無処理区発病度}}{\text{無処理区発病度}} \times 100$$

【0046】

【表7】

表 6

化合物No.	濃度(ppm)	防除率 (%)
2	250	100
3	250	96
4	250	100
5	250	100
6	250	100
7	250	100
8	250	100
9	250	93
10	250	100
14	250	100
15	250	100
16	250	100
17	250	100
18	250	100
19	250	100
22	250	100
24	250	100

【0047】

フロントページの続き

(72)発明者 富田 啓文

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地
三菱化学株式会社横浜総合研究所内

(72)発明者 東野 純明

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番地
三菱化学株式会社横浜総合研究所内